

**Excerpts from Japanese Patent Laid-Open Publication No.  
2000-200680**

Column 9, lines 16 - 30

[0036]

A characteristic of the present invention is that a shadow mask which is common to the patterning of the light emitting layer is used in the patterning process of the second electrode. A portion of the second electrode is patterned by evaporating, above the structure in which the thin film layer including the light emitting layer is formed, while maintaining the relative position between the shadow mask and the substrate in the patterning process of the light emitting layer. A remaining portion of the second electrode is patterned through evaporation with the relative position between the shadow mask and the substrate at the first time of the second electrode patterning process changed in a longitudinal direction of the stripe shaped opening of the shadow mask. In the second electrode thus created, a portion having a thickness corresponding to one evaporation process and a portion having a thickness corresponding to a plurality of evaporation processes are generated as the portion is below the strengthening line of the shadow mask, but the second electrode is electrically connected along the longitudinal direction and the conductivity of the electrode is thus not affected.

Column 9, line 38 - Column 10, line 12

[0039]

#### Example 1

For patterning a light emitting layer and a second electrode, a shadow mask was created having a structure in which a stripe-shaped opening is opened, a strengthening line is formed crossing the opening, and the mask portion and the strengthening line are formed in the same plane, as shown in Fig. 1. An external size of the shadow mask was 120 x 84 mm and a thickness of the mask portion was 25  $\mu\text{m}$ . 272 stripe-shaped openings 32 having a length of 70 mm and a width of 80  $\mu\text{m}$  were opened at a pitch of 300  $\mu\text{m}$ . In each stripe-shaped opening, strengthening lines 33 which cross and orthogonally intersect the opening and having a width of 20  $\mu\text{m}$  were formed at a pitch of 1.8 mm. In addition, the shadow mask was fixed to a stainless steel frame 34 having the same external size as the shadow mask and a width of 4 mm.

[0040]

The patterning of the first electrode was performed as described below. An ITO substrate in which an ITO transparent electrode was formed on a surface of a non-alkali glass substrate having a thickness of 1.1 mm through a sputtering evaporation was cut in a size of 120 x 100 mm. A photoresist was applied on the ITO substrate and patterned through a typical photolithography method to expose and develop a photomask. After an unnecessary portion of the ITO was removed through etching, the photoresist was dissolved and removed so that the ITO was patterned to a stripe-shape having a length of 110 mm and a width of 250  $\mu\text{m}$ . 200 first electrodes which were patterned to a striped shape were provided at a pitch of 300  $\mu\text{m}$ .

Column 10, line 40 - Column 11, line 19

[0044]

Next, as shown in Fig. 2, the shadow mask was placed in front of the substrate and the shadow mask and the substrate were contacted. A ferrite-based sheet magnet (YBM-1B manufactured by Hitachi Metals, Ltd.) was placed behind the substrate. During this process, the shadow mask was placed such that the stripe-shaped first electrode was orthogonal to the longitudinal direction of the stripe shaped opening of the shadow mask. In this condition, 30 nm of 8-hydroxy quinoline aluminum complex ( $\text{Alq}_3$ ) to which 1 wt% of 4-(dicyanomethylene)-2-methyl-6-(p-dimethylaminostyryl)-4-pyrene (DCM) was doped was evaporated and an R light emitting layer was patterned. Then, in the same state, 90 nm of DPVBi and 30 nm of  $\text{Alq}_3$  were evaporated to form the electron transport layer. Then, the thin film layer was exposed to a lithium vapor for doping (an amount corresponding to a thickness of 0.5 nm). After the thin film layer of the R light emitting region was formed through such sequence of processes, the second electrode was formed through vacuum evaporation of a resistive line heating system. The degree of vacuum during the deposition was  $2 \times 10^{-4}$  Pa or smaller and the substrate was rotated with respect to the evaporation source during the evaporation. In this state, aluminum was deposited to a thickness of 100 nm and a portion of the second electrode was patterned. The shadow mask was moved by 8 mm along the longitudinal direction of the stripe-shaped opening and aluminum was again evaporated to a thickness of 100 nm and the remaining portion of the second electrode was patterned.

[0045]

With such sequence of processes, first, the thin film layer of the R light emitting region and the second electrode above the thin film layer were formed. By repeating similar processes while moving the relative position of the shadow mask and the substrate to positions corresponding to the G light emitting region and B light emitting region, the thin film layer of the G light emitting region and the second electrode above the thin film layer and the thin film layer of the B light emitting region and the second electrode above the thin film layer were formed, to thereby manufacture a color display.

**MANUFACTURE OF ORGANIC ELECTRIC FIELD LIGHT EMITTING ELEMENT**

**Patent number:** JP2000200680  
**Publication date:** 2000-07-18  
**Inventor:** FUJIMORI SHIGEO; HIMESHIMA YOSHIO; IKEDA TAKESHI  
**Applicant:** TORAY IND INC  
**Classification:**  
- **International:** H05B33/10; G09F9/30; H05B33/14; H05B33/26  
- **European:**  
**Application number:** JP19990001893 19990107  
**Priority number(s):**

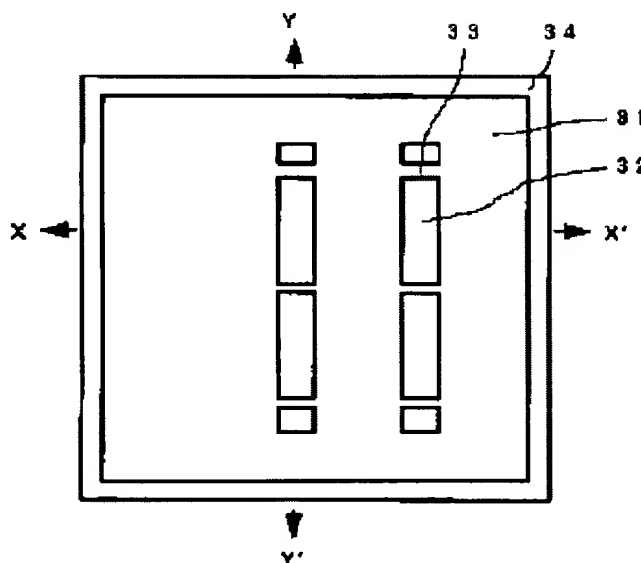
**Also published as:**

 JP2000200680 (/

**Abstract of JP2000200680**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To eliminate exchange of a shadow mask in a manufacturing process by patterning a light emitting layer using a common shadow mask, patterning a part of a second electrode in a state of holding a relative position between the shadow mask and a substrate, and changing the relative position between the shadow mask and the substrate and patterning the residual part of the second electrode.

**SOLUTION:** A shadow mask is provided with a plurality of stripe openings 32 and reinforcing lines 33 crossing the opening parts 32. The intervals between the reinforcing lines 33 are decided beforehand taking into account the width and the pitch of a first electrode to form a light-emitting layer. A second electrode functions as a continuous pattern, a part of the second electrode is formed in a state of holding the relative position between the shadow mask and the substrate in the light emitting layer patterning process, and secondly, the residual second electrode is formed in a state of changing the relative position between the shadow mask and the substrate in the longitudinal direction of the opening part 32 by an interval different from the pitch of the reinforcing line 33.



Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-200680

(P2000-200680A)

(43) 公開日 平成12年7月18日 (2000.7.18)

(51) Int.Cl. <sup>7</sup>	識別記号	F I	テーマコード (参考)
H 0 5 B 33/10		H 0 5 B 33/10	3 K 0 0 7
G 0 9 F 9/30	3 6 5	G 0 9 F 9/30	3 6 5 B 5 C 0 9 4
H 0 5 B 33/14		H 0 5 B 33/14	A
33/26		33/26	Z

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平11-1893

(22) 出願日 平成11年1月7日 (1999.1.7)

(71) 出願人 000003159

東レ株式会社

東京都中央区日本橋室町2丁目2番1号

(72) 発明者 藤森 茂雄

滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

(72) 発明者 姫島 義夫

滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

(72) 発明者 池田 武史

滋賀県大津市園山1丁目1番1号 東レ株式会社滋賀事業場内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子の製造方法

## (57) 【要約】

【課題】 発光層用シャドーマスクと第二電極用シャドーマスクをそれぞれ別個に作製するという手間を解消し、有機電界発光素子の製造工程でシャドーマスクの交換という素子の性能または設備コストに重大な影響を与える課題を解決する素子製造方法を提供する。

【解決手段】 基板上に形成された第一電極上に少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層を形成する工程と、第二電極を前記薄膜上に形成する工程を含む有機電界発光素子の製造方法であって、シャドーマスクを用いて発光層を1回の蒸着工程でパターンニングし、前記発光層パターンニング工程において使用したシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で蒸着を行うことにより第二電極の一部をパターンニングし、前記1回目の第二電極パターンニング工程において使用したシャドーマスクと前記基板との相対位置を変化させた状態で蒸着を行うことにより第二電極の残りの部分をパターンニングすることを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】基板上に形成された第一電極上に少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層を形成する工程と、第二電極を前記薄膜上に形成する工程を含む有機電界発光素子の製造方法であって、シャドーマスクを用いて発光層を1回の蒸着工程でパターンニングし、前記発光層パターンニング工程において使用したシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で蒸着を行うことにより第二電極の一部をパターンニングし、前記1回目の第二電極パターンニング工程において使用したシャドーマスクと前記基板との相対位置を変化させた状態で蒸着を行うことにより第二電極の残りの部分をパターンニングすることを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

【請求項2】第一電極を間隔をあけて配置された複数のストライプ形状にパターンニングし、発光層および第二電極を前記第一電極に対して交差する複数のストライプ形状にパターンニングすることを特徴とする請求項1記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項3】基板上に形成された第一電極上に少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層を形成する工程と、第二電極を前記薄膜上に形成する工程を含む有機電界発光素子の製造方法であって、共通のシャドーマスクを用いて前記発光層と前記第二電極とをパターンニングする際に、間隔をあけて配置された複数のストライプ形状開口部が存在し、前記ストライプ形状開口部を横切るように形成された補強線が存在するシャドーマスクを用いることを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

【請求項4】シャドーマスクと基板との相対位置を前記シャドーマスクのストライプ形状開口部の長手方向に変化させて第二電極のパターンニングを行うことを特徴とする請求項3記載の有機電界発光素子の製造方法。

【請求項5】基板上に形成された第一電極上に少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層を形成する工程と、第二電極を前記薄膜上に形成する工程を含む有機電界発光素子の製造方法であって、共通のシャドーマスクを用いて赤色領域に発光ピーク波長を有する発光層と第二電極とをパターンニングする一連の工程と、前記一連の工程と同様にして緑色および青色領域に対応した発光層と第二電極とをパターンニングするそれぞれ一連の工程とを含むことを特徴とする有機電界発光素子の製造方法。

【請求項6】赤色および緑色、青色領域にそれぞれ対応した発光層と第二電極とを、すべて共通のシャドーマスクを用いてパターンニングすることを特徴とする請求項5記載の有機電界発光素子の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、表示素子、フラットパネルディスプレイ、バックライト、照明、インテリア、標識、看板、電子写真機などの分野に利用可能な、

電気エネルギーを光に変換できる有機電界発光素子の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】陰極から注入された電子と陽極から注入された正孔とが、両極に挟まれた有機蛍光体内で再結合して発光するという有機電界発光素子の研究開発が活発に行われている。この素子は、薄型、低駆動電圧下での高輝度発光、蛍光材料を選ぶことによる多色発光が特徴であり注目を集めている。

【0003】高輝度および多色発光が可能であるこれらの有機電界発光素子を画像表示素子に利用する検討も盛んである。フルカラーディスプレイの場合には、所定の位置に赤色(R)、緑色(G)、青色(B)の発光層を形成する必要がある。従来、このようなパターン加工はフォトリソグラフィ法に代表されるウェットプロセスによって達成されたが、有機電界発光素子を形成する有機膜は水分や有機溶媒、薬液に対する耐久性に乏しい。特開平6-234969号公報に代表されるように、有機材料を工夫することによりウェットプロセスの可能な素子が得られることも示されているが、このような方法では素子に用いる有機材料が限定されてしまう。さらに、表示素子に必要な有機層上部の電極のパターン加工についても同様の問題がある。

【0004】このような理由から、蒸着法に代表されるドライプロセスによって有機電界発光素子を製造し、パターン加工にはマスク法を利用することが多かった。つまり、素子の基板前方にシャドーマスクを配置して、開口部のみに有機層あるいは電極を蒸着するものである。

【0005】多くの場合、第一電極となる透明電極をパターンニングした後、それに沿って発光層を含む薄膜層が形成される。カラーディスプレイにおいてはR、G、B3色の発光領域を形成するため少なくとも複数回の発光層のパターンニング工程を行うことが必要である。この際、それぞれシャドーマスクを用いた蒸着工程が繰り返される。このように第一電極に沿って発光層を含む薄膜層を形成した後、第一電極に交差した配置で第二電極をパターンニング形成することになり、第二電極形成専用のシャドーマスクが必要となる。

【0006】真空蒸着法で発光層を含む薄膜層を形成した後、一旦大気圧に戻して、シャドーマスクを交換して電極を形成する操作を行うと性能が低下するという問題があり、一方、真空中でシャドーマスクを交換する機構を有する装置は高額になるという設備コストの問題がある。

【0007】特開平9-115672号公報では、1枚のマスクにより基板上に発光色ごとに正孔輸送層、電子輸送層、電極を同一平面形状に順次形成する方法が開示されている。しかしながら、用いられるシャドーマスクは厚さ100 $\mu$ mであるが、ピッチ300で幅85 $\mu$ mのスリット状の開口部が305本形成された簾状のもの

であり、マスク部の撓みなどによる開口部形状の保持に問題が生じる懸念がある。また、マスクを張力を掛けて直線的に張る機構を設けるなど特別な装置を必要とするなどの問題がある。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】発光層用シャドーマスクと第二電極用シャドーマスクをそれぞれ別個に作製するという手間を解消し、1種類のシャドーマスクで発光層と第二電極のパターニングが可能で、シャドーマスク開口部形状の保持が確実であって、その設置や位置合わせが容易に行われ、有機電界発光素子の製造工程でシャドーマスクの交換という素子の性能または設備コストに重大な影響を与える課題を解決できるマスク蒸着法の開発が求められている。

【0009】

【課題を解決するための手段】本発明は、基板上に形成された第一電極上に少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層を形成する工程と、第二電極を前記薄膜上に形成する工程を含む有機電界発光素子の製造方法であって、シャドーマスクを用いて発光層を1回の蒸着工程でパターニングし、前記発光層パターニング工程において使用したシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で蒸着を行うことにより第二電極の一部をパターニングし、前記1回目の第二電極パターニング工程において使用したシャドーマスクと前記基板との相対位置を変化させた状態で蒸着を行うことにより第二電極の残りの部分をパターニングすることを特徴とする有機電界発光素子の製造方法である。

【0010】

【発明の実施の形態】本発明における有機電界発光素子とは、第一電極と第二電極との間に少なくとも有機化合物からなる発光層が存在し、電気エネルギーにより発光する素子である。

【0011】本発明の有機電界発光素子の製造方法は、基板上に形成された第一電極をパターニングする工程、少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層を前記第一電極上に形成する工程と、第二電極を前記薄膜層上に形成する工程とを含むものである。第一電極と第二電極は素子の発光のために十分な電流を供給する役割を有するものであり、光を取り出すために少なくとも一方は透明であることが望ましい。通常、基板上に形成される第一電極を透明電極とし、これを陽極とする。

【0012】本発明は、パターニングされた第一電極上に共通のシャドーマスクを用いて発光層と第二電極を形成することを特徴とし、シャドーマスクを用いた有機電界発光素子の製造において、第一電極のパターンに準拠して発光層を形成し、第一電極と交差して第二電極をパターニングする場合には、発光層用と第二電極用それぞれのパターニングのためのシャドーマスクが必要であり、それらを製造工程中で交換する操作が必要であっ

た。本発明では、発光層と第二電極を共通のシャドーマスクを用いて形成するので、作製するマスクは1種類であり、作製が容易であると共に交換操作が不要であり、素子の性能や設備コストへの重大な影響を回避することができるというメリットが得られる。

【0013】本発明においては、共通となるシャドーマスクを用いて、発光層を1回の蒸着工程でパターニングし、その後、発光層パターニング工程におけるシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で蒸着を行うことにより第二電極の一部をパターニングし、この1回目の第二電極パターニング工程におけるシャドーマスクと基板との相対位置を変化させた状態で蒸着を行うことにより第二電極の残りの部分をパターニングすることが特に好ましい。

【0014】発光層と第二電極は、基板上に間隔をあけて配置された複数のストライプ形状の第一電極に対して交差する複数のストライプ形状にパターニングされていることを特徴するものである。第一電極と第二電極が交差し重なり合っている部分が発光領域となる。本発明の発光層は、第一電極のパターンに対して交差する様にストライプ形状のパターンを有している。そして発光層と第二電極は共通のシャドーマスクを用いて形成されるので共通のストライプ形状を有している。

【0015】本発明では、間隔をあけて配置された複数のストライプ形状開口部が存在し、これらのストライプ形状開口部を横切るように形成された補強線が存在するシャドーマスクを用いることが好ましい。

【0016】さらに、シャドーマスクと基板との相対位置の変化は、シャドーマスクのストライプ形状開口部の長手方向に変化させて、第二電極のパターニングを行うものである。

【0017】上記のような補強線を有するシャドーマスクを用いて発光層を形成する場合には、ストライプ形状開口部を横切るように形成されている補強線の間隔を、予め第一電極の幅とピッチを考慮して、そのピッチに合致するか、その整数倍にすることにより、なんら支障無く発光層の蒸着形成作業を行うことができる。しかし、第二電極は連続的なパターンとして機能するものであり、補強線に遮られて第二電極形成成分の蒸着が行われない部分が生じないように、発光層パターニング工程におけるシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で1回目の第二電極形成成分を蒸着して第二電極の一部を形成し、シャドーマスクと基板との相対位置を補強線のピッチと異なる間隔だけストライプ形状開口部の長手方向に変化させた状態で第二電極形成成分を蒸着することで、1回目の蒸着で補強線に遮断されて蒸着されなかった部分を含めて残りの第二電極を形成する。このようにシャドーマスクと基板との相対位置を変化させて第二電極の残りの部分を形成することで、端部には発光層がなく第二電極のみが形成された部分ができることにな



り、これは第二電極の取り出し手段と接合する部分として好適に利用することができる。

【0018】さらに取り出し手段との接合部分を第二電極の両端に形成する必要がある場合には、シャドーマスクと基板との相対位置を、上記の2回目の第二電極パターンニングの場合に対して、ストライプ形状開口部の長手方向に変化させる方向を逆にした状態に置いて、第二電極形成成分を蒸着することで容易に第二電極の両端に発光層がなく電極のみからなる部分を得ることができる。この場合、第二電極パターンニング工程を少なくとも3回行うことになる。

【0019】フルカラーを表示するディスプレイにおいては、赤色(R)、緑色(G)、青色(B)の3色に発光する発光領域が単純マトリクス型ストライプ配列で設置される。このようなフルカラーの有機電界発光素子は、共通のシャドーマスクを用いて、赤色領域に発光ピーク波長を有する発光層と第二電極とをパターンニングする一連の工程と、この工程と同様にして緑色および青色領域に対応した発光層と第二電極とをパターンニングするそれぞれ一連の工程を行うことで製造することができる。本発明においては、赤色、緑色および青色領域にそれぞれ対応した発光層と第二電極とを、すべて共通のシャドーマスクを用いてパターンニングすることができる。なお、RGBの形成順序は限定されない。

【0020】本発明では、発光層および第二電極の形成に共通となる1種のシャドーマスクを用い、例えば、先ず赤色発光領域を形成する発光層をパターンニングし、そのシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で第二電極の一部を形成し、次いで、シャドーマスクのストライプ形状開口部の長手方向にシャドーマスクと基板との相対位置を移動して第二電極の残りの部分を形成して赤色発光領域の形成を完了させる。その後、赤色発光領域に隣接する緑色発光領域を設置する位置にシャドーマスクを移動して、赤色発光領域の形成と同様にして緑色発光領域の発光層とその上の第二電極を少なくとも2回の蒸着操作で形成して、緑色発光領域の形成を完了する。これらの一連の工程をもう一度繰り返して青色発光領域の発光層とその上の第二電極をパターンニング形成して有機電界発光素子を製造することができる。

【0021】本発明の有機電界発光素子の製造方法は次のように行われる。第一電極としては、酸化錫インジウム(ITO)透明電極膜を形成したガラス基板を用い、通常、フォトリソグラフィ法でパターンニングすることができる。例えば、パターンとして線幅270 $\mu\text{m}$ 、線間隔30 $\mu\text{m}$ 、ピッチ300 $\mu\text{m}$ のITO電極を形成し、これを第一電極とし、それに交差する状態、最も一般的な形として直交する状態で、発光層と第二電極のパターンニングを実施する。ITO電極の抵抗が高い場合にはガイド電極を設けることが行われる。

【0022】シャドーマスクを用いて少なくとも有機化

合物からなる発光層を含む薄膜層を形成する方法において、形成される薄膜層をシャドーマスクとの接触による傷つきから保護するため、薄膜層の厚さを上回る高さを有するスペーサーを基板上に形成しておく方法が取られる。これらのスペーサーは、通常は、第二電極の間隔の部分に形成され、従って、第一電極とは交差する方向にストライプ形状に形成される。さらに好適なのはマトリクス型に形成することである。

【0023】スペーサーの材料は公知のものが使用でき、無機物では酸化珪素をはじめとする酸化物材料、ガラス材料、セラミックス材料などを、有機物ではアクリル系やポリイミド系などのポリマー材料をあげることができる。さらに、スペーサーを黒色化して表示コントラスト向上に寄与するブラックマトリクスの機能を与えることや、パターンニングされた第一電極のエッジ部分を覆うように形成して、第一電極と第二電極との短絡を防止するエッジ保護層的な機能を与えることができる。

【0024】スペーサー層の形成方法としては、無機材料を用いる場合には、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング蒸着などのドライプロセスを利用する方法、有機材料を用いる場合には、ウェットプロセスを利用する方法があるが、特に限定されるものではない。スペーサーのパターンニング方法も特に限定されないが、第一電極のパターンニング工程後に基板全面にスペーサー層を形成し、公知のフォトリソグラフィ法を用いてパターンニングする方法が工程的に容易である。フォトレジストを使用したエッチング法あるいはリフトオフ法によってスペーサーをパターンニングしてもよいし、ポリマー材料に感光性を付与した感光性スペーサー材料を用い、スペーサー層を露光・現像することでパターンニングすることもできる。

【0025】パターンニングされた第一電極と、さらにスペーサーが形成された基板上に少なくとも有機化合物からなる発光層を含む薄膜層が形成される。有機電界発光素子に含まれる薄膜層としては、1)正孔輸送層/発光層、2)正孔輸送層/発光層/電子輸送層、3)発光層/電子輸送層、そして4)以上の組合せ物質を一層に混合した形態の発光層、のいずれであってもよい。すなわち、素子構成として少なくとも有機化合物からなる発光層が存在していれば、上記1)~3)の多層積層構造の他に4)のように発光材料単独または発光材料と正孔輸送材料や電子輸送材料を含む発光層を一層設けるだけでもよい。

【0026】正孔輸送層は正孔輸送性物質単独で、あるいは正孔輸送性物質と高分子結着剤により形成される。正孔輸送性物質としては、N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-1, 1'-ジフェニル-4, 4'-ジアミン(TPD)やN, N'-ジフェニル-N, N'-ジナフチル-1, 1'-ジフェニル-4, 4'-ジアミン(NPD)などに代表されるトリフ

10

20

30

40

50

フェニルアミン類、N-イソプロピルカルバゾール、ピラゾリン誘導体、スチルベン系化合物、ヒドラゾン系化合物、オキサジアゾール誘導体やフタロシアニン誘導体に代表される複素環化合物、ポリマー系では前記単量体を側鎖に有するポリカーボネートやポリスチレン誘導体、ポリビニルカルバゾール、ポリシラン、ポリフェニレンビニレンなどが好ましいが、特に限定されるものではない。

【0027】第一電極上にパターンニングして形成される発光層の材料は、アントラセンやピレン、そして8-ヒドロキシキノリンアルミニウムの他には、例えば、ビススチリルアントラセン誘導体、テトラフェニルブタジエン誘導体、クマリン誘導体、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルベンゼン誘導体、ピロロピリジン誘導体、ペリノン誘導体、シクロペンタジエン誘導体、チアジアゾロピリジン誘導体、ポリマー系では、ポリフェニレンビニレン誘導体、ポリパラフェニレン誘導体、そしてポリチオフェン誘導体などが使用できる。また、発光層に添加するドーパントとしては、ルブレネン、キナクリドン誘導体、フェノキサゾン660、DCM1、ペリノン、ペリレン、クマリン540、ジアザインダセン誘導体などがそのまま使用できる。

【0028】電子輸送層が形成される積層構造の場合、この層は発光領域の存在する全領域に形成されるので、正孔輸送層と同様に全面に形成することができる。電子輸送性物質としては、電界を与えられた電極間において陰極からの電子を効率よく輸送することが必要で、電子注入効率が高く、注入された電子を効率よく輸送することが望ましい。そのためには電子親和性が大きく、しかも電子移動度が大きく、さらに安定性に優れ、トラップとなる不純物が製造時および使用時に発生しにくい物質であることが要求される。このような条件を満たす物質として8-ヒドロキシキノリンアルミニウム、ヒドロキシベンゾキノリンベリリウム、2-(4-ヒフェニル)-5-(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール(t-BuPBD)などのオキサジアゾール系誘導体、薄膜安定性を向上させたオキサジアゾール二量体系誘導体の1,3-ビス(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジゾリル)ヒフェニレン(OXD-1)、1,3-ビス(4-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジゾリル)フェニレン(OXD-7)、トリアゾール系誘導体、フェナントロリン系誘導体などがある。

【0029】以上の正孔輸送層、発光層、電子輸送層に用いられる材料は単独で各層を形成することができるが、高分子結着剤としてポリ塩化ビニル、ポリカーボネート、ポリスチレン、ポリ(N-ビニルカルバゾール)、ポリメチルメタクリレート、ポリブチルメタクリレート、ポリエステル、ポリスルホン、ポリフェニレンエーテル、ポリブタジエン、炭化水素樹脂、ケトン樹

脂、フェノキシ樹脂、ポリウレタン樹脂などの溶剤可溶性樹脂や、フェノール樹脂、キシレン樹脂、石油樹脂、ユリア樹脂、メラミン樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、アルキド樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂などの硬化性樹脂などに分散させて用いることも可能である。

【0030】上記正孔輸送層、発光層、電子輸送層などの有機層の形成方法は、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング法などがある。特に限定されるものではないが、通常は、抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着などの蒸着法が特性面で好ましい。層の厚みは、有機層の抵抗値にもよるので限定することはできないが、10~1000nmの間から選ばれる。

【0031】第二電極となる陰極は、電子を本素子の発光層に効率よく注入できる物質であれば特に限定されない。従って、アルカリ金属などの低仕事関数金属の使用も可能であるが、電極の安定性を考えると、白金、金、銀、銅、鉄、錫、アルミニウム、マグネシウム、インジウムなどの金属、またはこれら金属と低仕事関数金属との合金などが好ましい例として挙げられる。また、あらかじめ有機層に低仕事関数金属を微量ドーピングしておく、その後比較的安定な金属を陰極として成膜することで、電極注入効率を高く保ちながら安定な電極を得ることもできる。これらの電極の作成法も抵抗加熱蒸着、電子ビーム蒸着、スパッタリング、イオンブレーティング法などのドライプロセスが好ましい。

【0032】本発明のストライプ形状開口部を横切る補強線を有するシャドーマスクを用いたマスク蒸着法による発光層および第二電極の形成は、ストライプ形状にパターンニングされた第一電極が形成され、その上に正孔輸送層が形成された基板面に該シャドーマスクを密着配置して蒸着を行うか、上記のように、薄膜層の厚さを上回る高さをもつスペーサーを基板上に形成して、シャドーマスクをスペーサー層に密着させた状態で蒸着するかなどの方法で行われる。後者の場合には、シャドーマスクは、スペーサーに密着するので薄膜層を傷付けることが防止される。

【0033】このようにパターンニングされた第一電極が形成され、さらにスペーサーが形成された基板上に薄膜層を形成する。初めに正孔輸送層を形成するが、この場合、発光領域の存在する全領域に正孔輸送材料を蒸着すればよい。

【0034】次の工程として、図1に示すシャドーマスクを用いた発光層のパターンニングを行う。シャドーマスクには、発光層パターンに対応した形状の開口部32が設けられており、開口部形状の変形を防止するため開口部を横切るようにしてマスク部分と同一面内に形成された補強線33が存在する。さらに、このシャドーマスクは取扱いを容易にするためにフレーム34に固定されている。このようなシャドーマスクを、そのストライプ形状開口部の長手方向が、パターンニングされたストライプ

状第一電極と交差するように配置して発光材料を蒸着する。スペーサーを形成した場合、補強線33がスペーサーと重なるように第一電極と開口部との位置を合わせながら、このシャドーマスクをスペーサーに密着させる。この状態で発光材料を蒸着することにより所望の領域に発光層を形成する。

【0035】薄膜層の構成として電子輸送層を形成する場合があるが、この場合には、正孔輸送層と同様に、発光領域の存在する全領域に電子輸送材料を蒸着して電子輸送層を形成することが可能であるが、本発明では各発光色について薄膜層と第二電極の形成を行う一連の工程を行うことが好ましい。従って、発光層のパターニング工程に連続して電子輸送材料を蒸着することで各色の発光層に対応した電子輸送層をパターニングすることが好ましい。

【0036】本発明では、第二電極のパターニングにおいて、発光層パターニングと共通のシャドーマスクを用いることが特徴である。発光層を含む薄膜層の形成された上に、発光層パターニング工程におけるシャドーマスクと基板との相対位置を保持した状態で蒸着を行うことで第二電極の一部をパターニングし、この1回目の第二電極パターニング工程におけるシャドーマスクと基板との相対位置をシャドーマスクのストライプ形状開口部の長手方向に変化させた状態で蒸着を行うことで第二電極の残りの部分をパターニングする。このようにして作製された第二電極においては、シャドーマスクの補強線の下部となることで蒸着工程1回分の厚みの部分と蒸着工程複数回分の厚みの部分が発生するが、その長手方向は電氣的に接続されており、電極の導通性に影響を与えるものではない。

【0037】有機電界発光素子では、必要に応じて第二電極のパターニング工程後に、公知技術を用いて保護層の形成や発光領域の封止を行うことがある。

【0038】

【実施例】以下、実施例および比較例をあげて本発明を説明するが、本発明はこれらの例によって限定されるものではない。

【0039】実施例1

発光層および第二電極パターニング用として、図1に示すように、ストライプ形状の開口部を有し、それを横切るように形成された補強線が存在し、マスク部分と補強線が同一平面内に形成された構造のシャドーマスクを作成した。このシャドーマスクの外形は120×84mm、マスク部分の厚さは25μmである。長さ70mm、幅80μmのストライプ形状開口部32がピッチ300μmで272本配置されている。各ストライプ形状開口部には、開口部を横切り直交する幅20μmの補強線33がピッチ1.8mmで形成されている。さらに、シャドーマスクは外形が等しい、幅4mmのステンレス鋼製フレーム34に固定されている。

【0040】第一電極のパターニングは次のように行った。厚さ1.1mmの無アルカリガラス基板表面にスパッタリング蒸着法によってITO透明電極が形成されたITO基板を120×100mmの大きさに切断した。このITO基板上にフォトリソを塗布して、通常のフォトリソグラフィ法によりフォトマスク露光・現像によってフォトリソをパターニングした。ITOの不要部分をエッチングして取り除いた後、フォトリソを溶解除去して、ITOを長さ110mm、幅250μmのストライプ状にパターニングした。このストライプ状にパターニングされた第一電極は300μmピッチで200本配置されている。

【0041】パターニングされた第一電極を形成したITO基板上に、次のようにしてスペーサーを形成する。ポリイミド系の感光性コーティング剤(東レ社製、UR-3100)をスピンコート法により上記ITO基板上に塗布して、クリーンオープン中、窒素雰囲気下で80℃、1時間ブリベキングした。次に、この塗布膜にフォトマスクを介してパターン露光して所望部分を光硬化させ、現像液(東レ社製、DV-505)を用いて現像した。その後、クリーンオープン中で180℃、30分間、さらに、250℃、30分間のベキングを行って、第一電極に直交するスペーサーを形成した。この透明なスペーサーは、長さ80mm、幅40μm、高さ4μmであり、100μmピッチで816本配置されている。また、このスペーサーは良好な電気絶縁性を有していた。上記のスペーサーを形成したITO基板を洗浄し、UV-オゾン処理を施した後で真空蒸着機内にセットした。また、上記発光層および第二電極共通のシャドーマスクを真空蒸着機内にセットした。本真空蒸着機では、真空中において、10μm程度の精度で基板とシャドーマスクの相対位置の位置合わせが可能である。

【0042】薄膜層は抵抗線加熱方式による真空蒸着法によって以下のように形成した。なお、蒸着時の真空度は、 $2 \times 10^{-4}$  Pa以下であり、蒸着中は蒸着源に対して基板を回転させた。

【0043】まず、銅フタロシアニン(20nm、ビス(N-エチルカルバゾール))を120nm基板全面に蒸着して正孔輸送層を形成した。

【0044】次に、図2に示すようにシャドーマスクを基板前方に配置して両者を密着させ、基板後方にはフェライト系板磁石(日立金属社製、YBM-1B)を配置した。この際、ストライプ状第一電極がシャドーマスクのストライプ形状開口部の長手方向と直交する位置に配置した。この状態で、1wt%の4-(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(p-ジメチルアミノスチリル)-4-ピラン(DCM)をドーピングした8-ヒドロキシキノリンアルミニウム錯体( $Alq_3$ )を30nm蒸着し、R発光層のパターニングを行った。次いで、そのままの状態、DPVBiを90nm、 $Alq_3$ を3

0nm蒸着して電子輸送層を形成した。この後、薄膜層をリチウム蒸気にさらしてドーピング（膜厚換算量0.5nm）した。このような一連の工程でR発光領域の薄膜層を形成した後、第二電極を抵抗線加熱方式による真空蒸着法によって形成した。なお、この蒸着時の真空度は、 $2 \times 10^{-4}$  Pa以下であり、蒸着中は2つの蒸着源に対して基板を回転させた。この状態でアルミニウムを100nmの厚さに蒸着して第二電極の一部をパターンニングした。シャドーマスクをストライプ形状開口部の長手方向に8mm移動した後、再びアルミニウムを100nmの厚さに蒸着して第二電極の残りをパターンニングした。

【0045】このような一連の工程を行うことにより、まずR発光領域の薄膜層とその上の第二電極を形成した。これと同様の一連の工程をシャドーマスクと基板との相対位置をG発光領域およびB発光領域の位置に移動して繰り返すことにより、G発光領域の薄膜層とその上の第二電極、B発光領域の薄膜層とその上の第二電極を形成してカラーディスプレイを製造した。

【0046】G発光層のパターンニングには、0.3wt%の1,3,5,7,8-ペンタメチル-4,4-ジフロロ-4-ボラ-3a,4a-ジアザ-s-インダセン（PM546）をドーピングしたAlq<sub>3</sub>を43nm蒸着した。B発光層のパターンニングには、4,4'-ビス（2,2'-ジフェニルビニル）ビフェニル（DPVB<sub>i</sub>）を40nm蒸着した。

【0047】上記のようにして、幅250μm、ピッチ300μm、本数200本のITOストライプ状第一電極上に、これと直交するようにパターンニングされたRGB発光層を含む薄膜層とストライプ状第二電極が形成された単純マトリクス型フルカラー有機電界発光素子を作製した。RGBからなる3つの発光領域が1画素を形成するので、本有機電界発光素子は、300μmピッチで272×200画素を有する。

【0048】本有機電界発光素子のそれぞれの発光色の発光領域は60×250μmの大きさでRGBそれぞれ独立の色で均一に発光した。また、発光層のパターンニング時における発光材料の回り込みなどによる発光領域の発光色純度低下も認められなかった。また、この発光装置を線順次駆動したところ、パターン表示とそのカラー化が可能であった。

#### 【0049】実施例2

発光層および第二電極パターンニング用シャドーマスクは、実施例1に記述した方法に準じて作製した。

【0050】ITOのパターンニングも実施例1に準じて実施し、長さ110mm、幅270μm、ピッチ300μm、本数200本のストライプ状第一電極をパターンニングした。

【0051】スペーサーの形成を次のように行った。ポリイミド系感光性コーティング剤の塗布およびベーキング処理は実施例1の通り行った。スペーサーのパターンニングに用いるフォトリソマスクは、60×250μmの開口部を第一電極と平行する方向に100μmピッチで816個、第一電極と直交する方向に300μmピッチで200個有するものを使用した。この開口部の長手方向が、第一電極の幅方向に重なるようにフォトリソマスクを配置してパターン露光・現像し、熱処理してマトリクス型のスペーサーを形成した。

【0052】発光層の形成および第二電極の形成はいずれも実施例1に準じて行ってカラーディスプレイを製造した。

【0053】本有機電界発光素子のそれぞれの発光色の発光領域は60×250μmの大きさでRGBそれぞれ独立の色で均一に発光した。また、発光層のパターンニング時における発光材料の回り込みなどによる発光領域の発光色純度低下も認められなかった。また、スペーサーがITO電極のエッジ保護層として機能することから、各画素におけるリーク電流が減少し、実施例1に比べて表示がより鮮明となった。

#### 【0054】

【発明の効果】本発明は、有機電界発光素子の発光層と第二電極のパターンニングを、共通のシャドーマスクを用いてマスク蒸着法で行うことが特徴であり、製作するシャドーマスクは1種類のみであり、その移動を行うだけで素子の製造ができる。さらに、補強線を有するシャドーマスクを用いることにより、撓みによる変形が抑制され、シャドーマスクの取り扱いや位置合わせが容易となる。また、薄いシャドーマスクが使用できるために、シャドーマスクの厚みによる蒸着影の問題なども軽減され、高精度パターンニングが実現できる。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明に使用されるシャドーマスクの一例を説明する平面図。

【図2】本発明における発光層の形成方法の一例を説明するXX'断面図。

#### 【符号の説明】

- 1 基板
- 2 第一電極
- 4 スペーサー
- 5 正孔輸送層
- 6 発光層
- 12 発光材料
- 31 マスク部分
- 32 開口部
- 33 補強線
- 34 フレーム

